

**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM
GEBIET DES PATENTWESENS**

PCT

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE
PATENTIERBARKEIT**

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)

REC'D 29 MAR 2006
WIPO
PCT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts B03/0730PC cd	WEITERES VORGEHEN	siehe Formblatt PCT/IPEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2005/002697	Internationales Anmeldedatum (<i>Tag/Monat/Jahr</i>) 14.03.2005	Prioritätsdatum (<i>Tag/Monat/Jahr</i>) 23.03.2004	
Internationale Patentklassifikation (IPC) oder nationale Klassifikation und IPC INV. C09K11/06 H05B33/14 H01L51/30 C07D487/04			
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT			

- Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 6 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
- Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen
 - (*an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt*) insgesamt 8 Blätter; dabei handelt es sich um
 - Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).
 - Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.
 - (*nur an das Internationale Büro gesandt*) insgesamt (bitte Art und Anzahl der/des elektronischen Datenträger(s) angeben) , der/die ein Sequenzprotokoll und/oder die dazugehörigen Tabellen enthält/enthalten, nur in elektronischer Form, wie im Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll angegeben (siehe Abschnitt 802 der Verwaltungsvorschriften).
- Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:
 - Feld Nr. I Grundlage des Berichts
 - Feld Nr. II Priorität
 - Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erforderliche Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
 - Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
 - Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erforderlichen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
 - Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen
 - Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
 - Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 23.01.2006	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 28.03.2006
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde Europäisches Patentamt - P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk - Pays Bas Tel. +31 70 340 - 2040 Tx: 31 651 epo nl Fax: +31 70 340 - 3016	Bevollmächtigter Bediensteter Kövecs, M Tel. +31 70 340-8960



**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT
ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT**

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2005/002697

Feld Nr. I Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bericht auf der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.
 - Der Bericht beruht auf einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
 - internationale Recherche (nach Regeln 12.3 und 23.1 b))
 - Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4)
 - internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 und/oder 55.3)
2. Hinsichtlich der **Bestandteile*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt*):

Beschreibung, Seiten

1-33 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-15 eingegangen am 23.01.2006 mit Schreiben vom 23.01.2006

- einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll

3. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:
 - Beschreibung: Seite
 - Ansprüche: Nr.
 - Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):
4. Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigefügten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).
 - Beschreibung: Seite
 - Ansprüche: Nr.
 - Zeichnungen: Blatt/Abb.
 - Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
 - etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT
ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT**

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2005/002697

Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche 1-15
	Nein: Ansprüche
Erfinderische Tätigkeit (IS)	Ja: Ansprüche 1-15
	Nein: Ansprüche
Gewerbliche Anwendbarkeit (IA)	Ja: Ansprüche: 1-15
	Nein: Ansprüche:

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):

siehe Beiblatt

Zu Punkt V.

Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

- D1: US-A-4 157 443 (FLETCHER, IAN J) 5. Juni 1979 (1979-06-05)
- D2: DE 27 49 902 A1 (CIBA-GEIGY AG) 18. Mai 1978 (1978-05-18)
- D3: EP-A-1 026 222 (MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD) 9. August 2000 (2000-08-09)
- D4: DE 33 04 330 A1 (BASF AG) 9. August 1984 (1984-08-09)
- D5: US-A-4 739 053 (ALBERT ET AL) 19. April 1988 (1988-04-19)
- D6: US-A-3 817 990 (STROBEL A,US ET AL) 18. Juni 1974 (1974-06-18)
- D7: NARITA S ET AL: "APPLICATION OF FLUORESCENT TRIAZOLES TO ANALYTICAL CHEMISTRY. I. DETERMINATION OF AROMATIC PRIMARY AMINE WITH 2,4,6-TRIAMINOPYRIMIDINE AS A REAGENT" CHEMICAL AND PHARMACEUTICAL BULLETIN, PHARMACEUTICAL SOCIETY OF JAPAN, TOKYO, JP, Bd. 33, Nr. 11, 1985, Seiten 4928-4934, XP008049633 ISSN: 0009-2363

1. NEUHEIT

Keins der zitierten prior art Dokumente zum Stand der Technik (D1-D7) nennt eine Triazolyl-(4,5-d)-pyrimidin Verbindung als beschrieben mit den Formeln I-IV im Anspruch 14 oder eine elektrolumineszente Vorrichtung die diese Verbindung beinhaltet.

Ansprüche 1-15 sind deshalb neu (Artikel 33(1) PCT und Artikel 33(2) PCT).

2. ERFINDERISCHE TÄTIGKEIT

2.1 Anspruch 1

Das Dokument D3 wird als nächstliegender Stand der Technik angesehen. Es offenbart (die Verweise in Klammern beziehen sich auf dieses Dokument):

Eine elektrolumineszente Vorrichtung die eine organische Emittierschicht beinhaltet. (Anspruch 9). Die Emittierschicht besteht aus Verbindungen mit einer Ringstruktur, wie zB. Triazolverbindungen (Anspruch 13).

Der Gegenstand des unabhängigen Anspruchs 1 unterscheidet sich hiervon dadurch, daß es konkrete Beispiele, nämlich Triazolo-(4,5-d)-pyrimidinderivate als Emittermoleküle in einer organische Leuchtdiode verwendet. In der Anmeldung wurde kein technischer Effekt bezüglich dieses Unterschieds gezeigt.

Die mit der vorliegenden Erfindung zu lösende Aufgabe kann somit darin gesehen werden, alternative Triazolverbindungen als Emittermolekül zu suchen.

Es gibt im Dokument D3 keinen Hinweis darauf Triazolo-(4,5-d)-pyrimidinderivate als Emittermoleküle zu verwenden und dem Fachmann scheint es nicht selbstverständlich die genannten Derivate zu benützen.

Der Gegenstand des Anspruchs 1 ist somit erfängerisch (Artikel 33 (1) PCT und Artikel 33(3) PCT).

- 2.2 Die Ansprüche 2-13 sind vom Anspruch 1 abhängig und erfüllen damit ebenfalls die Erfordernisse des PCT in bezug auf erfängerische Tätigkeit.
- 2.3 Unabhängiger Anspruch 14
Das *Dokument D1* wird als nächstliegender Stand der Technik gegenüber dem Gegenstand des Anspruchs 1 angesehen. Es offenbart (die Verweise in Klammern beziehen sich auf dieses Dokument):

Eine Triazolyl-(4,5-d)-pyrimidinverbindung (Anspruch 5), die Aminogruppen am Pyrimidinring und einen Heteroalkylrest am Triazolring beinhaltet.

Die Herstellung der oben genannten Verbindung erfolgt durch die Kopplung von einem Pyrimidin-amin (Spalte 4, Formel (6)) mit einem Diazoniumsalz (Spalte 4, Formel (7)) und anschließenden oxydativen Ringschluß (Spalte 4, Zeile 33-35).

Der Gegenstand des unabhängigen Anspruchs 14 unterscheidet sich hiervon dadurch, daß es cyclische Aminogruppen und Dimethylamin als Reste beinhaltet. In der Anmeldung wurde kein technischer Effekt bezüglich dieses Unterschieds gezeigt.

Die mit der vorliegenden Erfindung zu lösende Aufgabe kann somit nur darin gesehen werden, alternative Triazolverbindungen zu suchen.

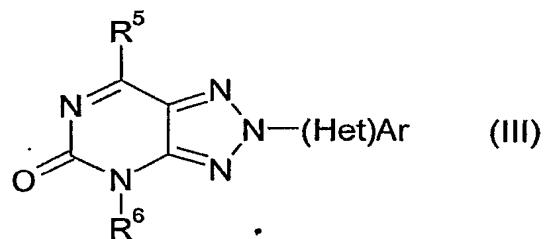
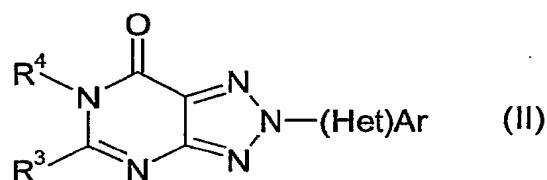
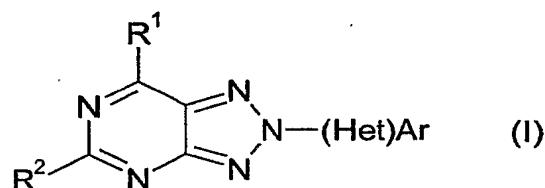
Es gibt keinen Hinweis darauf in den Dokumenten D1-D7 eine Triazolverbindung mit den genannten Resten herzustellen.

Der Gegenstand der Anspruchs 14 ist somit erforderlich (Artikel 33(1) PCT und Artikel 33(3) PCT).

2.4 Anspruch 15 beinhaltet die Herstellungsmethode von der Verbindung beschrieben in Anspruch 14 und erfüllt damit ebenfalls die Erfordernisse des PCT in bezug auf erforderliche Tätigkeit.

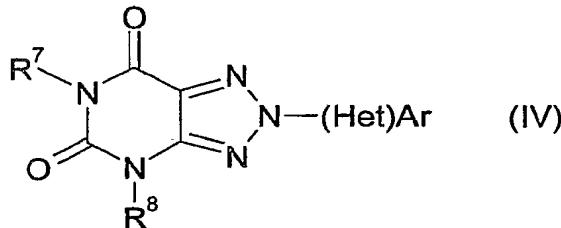
Geänderte Patentansprüche

1. Verwendung von Triazolderivaten ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Triazolopyrimidinderivaten und Triazolouracilderivaten in organischen Leuchtdioden.
- 5 2. Verwendung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Triazolderivate als Emittermoleküle eingesetzt werden.
- 10 3. Verwendung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Triazolderivate als Wirtsmoleküle in der Emitterschicht eingesetzt werden.
- 15 4. Verwendung nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass die Triazolderivate ausgewählt sind aus Verbindungen der Strukturformeln I, II, III oder IV:



20

B03/0730



worin die Symbole die folgenden Bedeutungen aufweisen:

5 R^1, R^2 unabhängig voneinander H, Alkyl, Aryl, Heteroaryl, OH, O-Alkyl,
O-Aryl, Halogen oder Amino, wobei mindestens einer der Substi-
tuenten R^1 oder R^2 OH, O-Alkyl, O-Aryl, Halogen oder Amino be-
deutet;

10 R^3, R^5 unabhängig voneinander H, Alkyl, Aryl, Heteroaryl, OH, O-Alkyl,
O-Aryl, Halogen oder Amino;

15 R^4, R^6, R^7, R^8 unabhängig voneinander H, Alkyl, Aryl oder Heteroaryl;
oder
 R^3 und R^4 bilden gemeinsam mit den Atomen, an die sie gebunden sind, einen
4- bis 8-gliedrigen Ring, der gegebenenfalls weitere Heteroatome
enthält und gesättigt oder ungesättigt und unsubstituiert oder sub-
stituiert ist;

20 (Het)Ar Aryl oder Heteroaryl.

5. Verwendung nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass der Rest (Het)Ar ein
Rest der Formel

20



ist, worin

25 R^{13} H, Alkyl, O-Alkyl, S-Alkyl, Aryl, O-Aryl, S-Aryl oder Alkenylaryl
bedeutet, bevorzugt H, OCH₃, Phenyl, das substituiert oder unsubstitu-
iert sein kann, oder Styryl, das unsubstituiert ist.

6. Verwendung nach Anspruch 4 oder 5, dadurch gekennzeichnet, dass in den Tri-
azolderivaten der Formel I

30 R^1 Cl, OH, OCH₃, OPh oder Morpholino bedeutet, bevorzugt OH, OCH₃,
Cl oder Morpholino, besonders bevorzugt Cl oder Morpholino;

B03/0730

und/oder

5 R² OH, OCH₃, OPh, Piperidino, Pyrrolidino, Morpholino oder N(CH₃)₂ bedeutet, bevorzugt OH, N(CH₃)₂, Piperidino, Pyrrolidino oder Morpholino, besonders bevorzugt N(CH₃)₂.

7. Verwendung nach einem der Ansprüche 4 oder 5, dadurch gekennzeichnet, dass in den Triazolderivaten der Formeln II oder III

10 R³, R⁵ unabhängig voneinander OH, OCH₃, OPh, Piperidino, Pyrrolidino, Morpholino oder N(CH₃)₂ bedeuten, bevorzugt OH, N(CH₃)₂, Piperidino, Pyrrolidino oder Morpholino, besonders bevorzugt Piperidino, Pyrrolidino oder Morpholino;

und/oder

15 R⁴, R⁶ unabhängig voneinander H, CH₃ oder Phenyl bedeuten, bevorzugt H.

8. Verwendung nach einem der Ansprüche 4 oder 5, dadurch gekennzeichnet, dass in den Triazolderivaten der Formel II

20 R³ und R⁴ gemeinsam mit den Atomen, an die sie gebunden sind, einen 5- bis 7-gliedrigen Ring bilden, der gegebenenfalls weitere Heteroatome, bevorzugt ausgewählt aus S, N und O, besonders bevorzugt ein weiteres N-Atom, enthält und gesättigt oder ungesättigt, bevorzugt gesättigt, ist, und unsubstituiert oder substituiert ist; besonders bevorzugt weist der Ring einen Substituenten ausgewählt aus Alkyl und Aryl an dem einen weiteren N-Atom auf, während die übrigen Atome des Rings unsubstituiert sind.

25 9. Verwendung nach Anspruch 4 oder 5, dadurch gekennzeichnet, dass in den Triazolderivaten der Formel IV

30 R⁷ und R⁸ unabhängig voneinander H, CH₃ oder Phenyl, bevorzugt CH₃ bedeuten.

35 10. Organische Leuchtdiode enthaltend mindestens ein Triazolderivat gemäß einem der Ansprüche 1 bis 9.

11. Licht-emittierende Schicht enthaltend mindestens ein Triazolderivat gemäß einem der Ansprüche 1 bis 9.

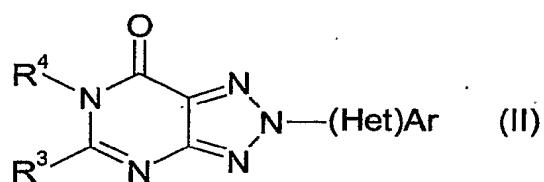
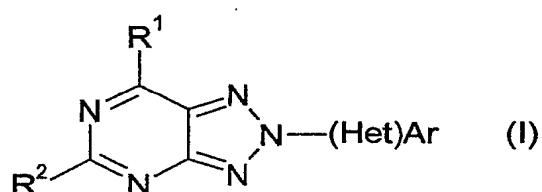
B03/0730

12. Organische Leuchtdiode enthaltend eine Licht-emittierende Schicht gemäß Anspruch 11.

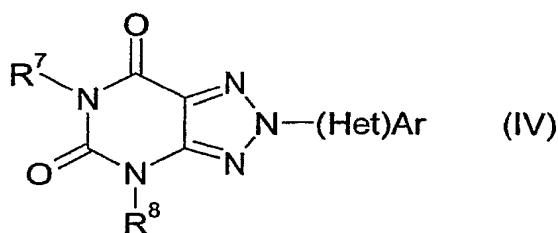
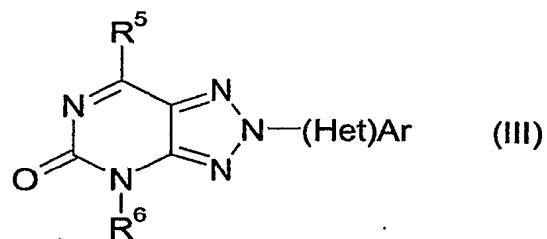
5 13. Vorrichtung ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus stationären Bildschirmen wie Bildschirmen von Computern, Fernsehern, Bildschirmen in Druckern, Küchengeräten sowie Reklametafeln, Beleuchtungen, Hinweistafeln und mobilen Bildschirmen wie Bildschirmen in Handys, Laptops, Fahrzeugen sowie Zielanzeigen an Bussen und Bahnen enthaltend ein OLED gemäß Anspruch 10 oder 12.

10

14. Triazolderivate der allgemeinen Formel I, II, III oder IV



15



worin die Symbole die folgenden Bedeutungen aufweisen:

20

B03/0730

38

1 R¹ Halogen, bevorzugt Cl, oder eine cyclische Aminogruppe, besonders bevorzugt Morpholino;

5 R² Dimethylamino;

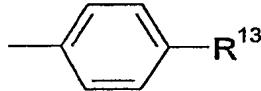
10 R³, R⁵ unabhängig voneinander Amino, bevorzugt Dimethylamino oder eine cyclische Aminogruppe, besonders bevorzugt Morpholino, Pyrrolidino oder Piperidino;

15 R⁴, R⁶ unabhängig voneinander H, Alkyl, Aryl oder Heteroaryl, bevorzugt H;

20 R⁷, R⁸ unabhängig voneinander H, Alkyl, Aryl, wobei R⁷ und R⁸ nicht gleichzeitig H bedeuten, bevorzugt Alkyl, besonders bevorzugt Methyl;

25 oder R³ und R⁴ gemeinsam mit den Atomen, an die sie gebunden sind, einen 5- bis 7-gliedrigen Ring bilden, der gegebenenfalls weitere Heteroatome, bevorzugt ausgewählt aus S, N und O, besonders bevorzugt ein weiteres N-Atom, enthält und gesättigt oder ungesättigt, bevorzugt gesättigt, ist, und unsubstituiert oder substituiert ist; besonders bevorzugt weist der Ring einen Substituenten ausgewählt aus Alkyl und Aryl an dem einen weiteren N-Atom auf, während die übrigen Atome des Rings unsubstituiert sind;

(Het)Ar einen Rest der Formel



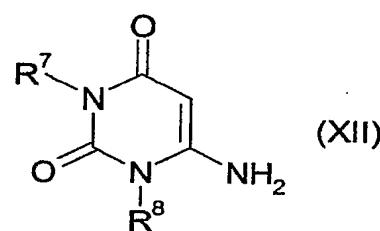
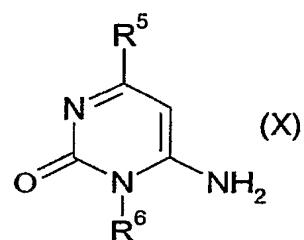
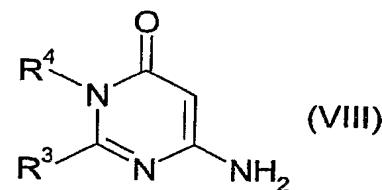
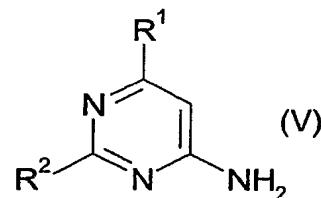
30 R¹³ H, Alkyl, O-Alkyl, S-Alkyl, Aryl, O-Aryl, S-Aryl oder Alkenylaryl, bevorzugt O-Alkyl, O-Phenyl, Phenyl, das substituiert oder unsubstituiert sein kann, oder Styryl, das unsubstituiert ist, besonders bevorzugt O-Alkyl oder Phenyl, das unsubstituiert ist, ganz besonders bevorzugt in den Verbindungen der Formeln I, II oder III O-CH₃ oder in den Verbindungen der Formel IV O-CH₃ oder unsubstituiertes Phenyl.

35

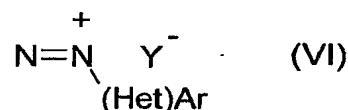
B03/0730

15. Verfahren zur Herstellung von Triazolderivaten der allgemeinen Formeln I, II, III und IV gemäß Anspruch 14, umfassend die Schritte:

5 a) Kupplung eines Amins der Formel V, VIII, X oder XII

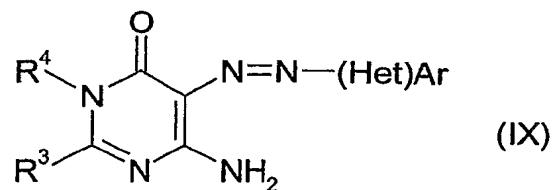
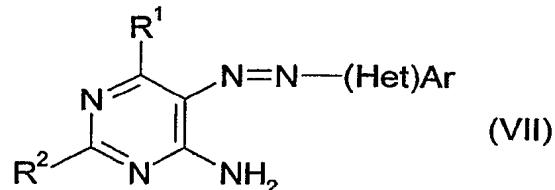


mit einem Diazoniumsalz der Formel VI



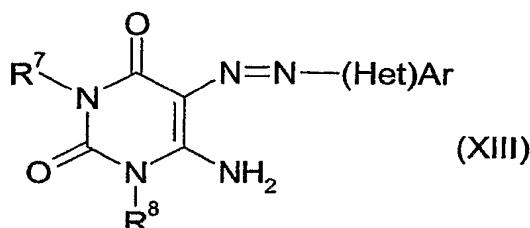
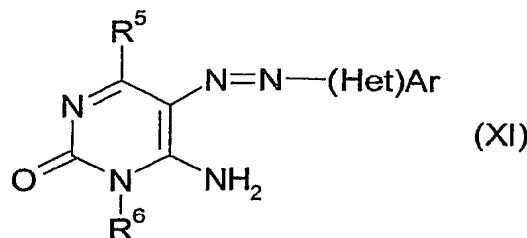
10

wobei eine Azoverbindung der Formel VII, IX, XI oder XIII erhalten wird;



15

B03/0730



und

5

b) oxidativer Ringschluss der Azoverbindung der Formel VII, IX, XI oder XII, wobei das entsprechende Triazolderivat der Formel I, II, III oder IV gebildet wird;

10

worin die Symbole die folgenden Bedeutungen aufweisen:

15 R^1 Halogen, bevorzugt Cl, oder eine cyclische Aminogruppe, besonders bevorzugt Morpholino;

20

R^2 Dimethylamino;

25 R^3, R^5 unabhängig voneinander Amino, bevorzugt Dimethylamino oder eine cyclische Aminogruppe, besonders bevorzugt Morpholino, Pyrrolidino oder Piperidino;

30

R^4, R^6 unabhängig voneinander H, Alkyl, Aryl oder Heteroaryl, bevorzugt H;

35

R^7, R^8 unabhängig voneinander H, Alkyl, Aryl, wobei R^7 und R^8 nicht gleichzeitig H bedeuten, bevorzugt Alkyl, besonders bevorzugt Methyl;

oder

B03/0730

5 R^3 und R^4 gemeinsam mit den Atomen, an die sie gebunden sind, einen 5- bis 7-gliedrigen Ring bilden, der gegebenenfalls weitere Heteroatome, bevorzugt aus S, N und O, besonders bevorzugt ein weiteres N-Atom, enthält und gesättigt oder ungesättigt, bevorzugt gesättigt, ist, und unsubstituiert oder substituiert ist; besonders bevorzugt weist der Ring einen Substituenten ausgewählt aus Alkyl und Aryl an dem einen weiteren N-Atom auf, während die übrigen Atome des Rings unsubstituiert sind;

10 (Het)Ar einen Rest der Formel

15 R^{13} H, Alkyl, O-Alkyl, S-Alkyl, Aryl, O-Aryl, S-Aryl oder Alkenylaryl, bevorzugt O-Alkyl, O-Phenyl, Phenyl, das substituiert oder unsubstituiert sein kann, oder Styryl, das unsubstituiert ist, besonders bevorzugt O-Alkyl oder Phenyl, das unsubstituiert ist, ganz besonders bevorzugt in den Verbindungen der Formeln I, II oder III $O-CH_3$ oder in den Verbindungen der Formel IV $O-CH_3$ oder unsubstituiertes Phenyl;

20 und

Y⁻ ein Anion, bevorzugt ein Halogenid wie Chlorid oder Bromid, ein Sulfation oder ein Tetrafluorboration.

25